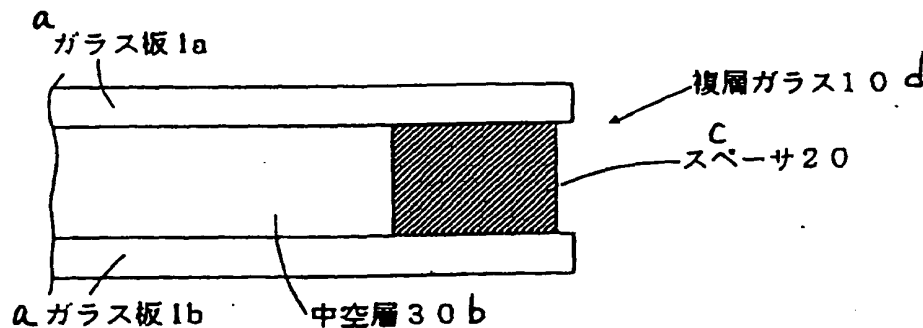




(51) 国際特許分類 C08L 23/04, E06B 3/66, C03C 27/10	A1	(11) 国際公開番号 WO97/23561  (43) 国際公開日 1997年7月3日(03.07.97)
(21) 国際出願番号 PCT/JP96/03787  (22) 国際出願日 1996年12月25日(25.12.96)  (30) 優先権データ 特願平7/339629 1995年12月26日(26.12.95) JP 特願平8/214865 1996年8月14日(14.08.96) JP  (71) 出願人 (米国を除くすべての指定国について) 旭硝子株式会社(ASAHI GLASS COMPANY LTD.)(JP/JP) 〒100 東京都千代田区丸の内二丁目1番2号 Tokyo, (JP) (72) 発明者; および (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ) 渡谷 崇(SHIBUYA, Takashi)(JP/JP) 小寺省吾(KOTERA, Seigo)(JP/JP) 中川秀樹(NAKAGAWA, Hideki)(JP/JP) 松山祥孝(MATSUYAMA, Yoshitaka)(JP/JP) 〒221 神奈川県横浜市神奈川区羽沢町1150番地 旭硝子株式会社 中央研究所内 Kanagawa, (JP) (74) 代理人 弁理士 山本量三, 外(YAMAMOTO, Ryoza et al.) 〒101 東京都千代田区神田東松下町38番地 島本鋼業ビル Tokyo, (JP)	(81) 指定国 CA, US, 欧州特許 (AT, BE, CH, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).  添付公開書類 国際調査報告書	

(54) Title: RESIN COMPOSITION FOR BUILDING MATERIALS AND DOUBLE-GLAZED UNIT

(54) 発明の名称 建材用樹脂組成物および複層ガラス



a ... flat glass

b ... spacing layer

c ... spacer

d ... double-glazed unit

(57) Abstract

A double-glazed unit comprising at least two flat glasses arranged in such a manner that they face with each other across a spacing layer formed by resin spacers which are made of a thermoplastic resin composition comprising 50 to 98 wt.% of a butyl rubber and 2 to 50 wt.% of a crystalline polyolefin, each percentage being based on the total amount of the rubber and the polyolefin, and which exhibit a JIS A hardness of 10 to 90 at 25 °C.

(57) 要約

ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとを含み、両者の合計量に対するブチル系ゴムの割合が50～98重量%、結晶性ポリオレフィンの割合が2～50重量%である熱可塑性樹脂組成物を用いた25℃においてJIS A硬度が10～90である樹脂製スペーサによって、2枚以上のガラス板が中空層を形成するように対向配置された複層ガラス。

情報としての用途のみ

PCTに基づいて公開される国際出版をパンフレット第一頁にPCT加盟国を特定するために使用されるコード

AL	アルバニア	EE	エストニア	LR	リベリア	RU	ロシア連邦
AM	アルメニア	ES	スペイン	LS	レソト	RD	ローダ
AT	オーストリア	FI	フィンランド	LT	リトアニア	DE	ドイツ
AU	オーストラリア	FR	フランス	LU	ルクセンブルグ	SG	シンガポール
AZ	アゼルバイジャン	GB	イギリス	LV	ラトヴィア	SI	スロベニア
BB	バハマ	GE	グルジア	MC	モナコ	SK	スロバキア共和国
BE	ベルギー	GR	ギリシャ	MD	モルドバ	SS	セルビア共和国
BG	ブルガリア	HA	ガイアナ	MG	マダガスカル	SZ	スワジランド
BJ	ベナン	HN	ホンジュラス	MK	マケドニア	TD	チャド
BR	ブラジル	IE	アイルランド	ML	マリ	TG	トーゴ
BY	ベラルーシ	IS	アイスランド	MR	モーリタニア	TH	タイ
CA	カナダ	IT	イタリア	MW	マラウイ	TM	トルクメニスタン
CC	中東アフリカ共和国	JP	日本	MX	メキシコ	TR	トルコ
CF	コンゴ	KE	ケニア	NE	ニジェール	TT	トリニダード・トバゴ
CG	コンゴ	KZ	カザフスタン	NL	オランダ	UA	ウクライナ
CH	スイス	KG	キルギスタン	NZ	ニュージーランド	UG	ウガンダ
CI	コート・ジボアール	KR	朝鮮民主主義人民共和国	NO	ノルウェー	US	米国
CM	カメルーン	KW	クウェート	PL	ポーランド	UZ	ウズベキスタン共和国
CN	中国	KZ	カザフスタン	PT	ポルトガル	VN	ベトナム
CZ	チェコ共和国	LI	リヒテンシュタイン	RO	ルーマニア		
DE	ドイツ	LU	ルクセンブルグ				
DK	デンマーク	LV	ラトヴィア				

## 明 細 書

### 建材用樹脂組成物および複層ガラス

#### 技術分野

本発明は、建材用樹脂組成物、特に複層ガラスのスペーサ用樹脂組成物、および樹脂製スペーサを用いた複層ガラスに関する。

#### 背景技術

近年、複層ガラスは省エネルギーの観点から注目され、その需要が増加しつづけている商品である。その製造には多くの工程が必要であるため、通常ガラス板に比べコストが高く、さらなる低コスト化が望まれている。

現在の複層ガラスの多くは、第4図に示すように、最低2枚のガラス板1a, 1bをスペーサ2を介して対向させ、ガラス板1a, 1bとの間に中空層を形成してなる。そして、ガラス板1a, 1bとスペーサ2との間に一次シール材3を介在させることによって、中空層を外気から遮断し、対向しているそれらのガラス板の周縁部の内面とスペーサ外周面とで構成された空隙（凹部）をポリスルフィド系またはシリコン系で代表される常温硬化型の二次シール材で封着してなっている。

これまで、複層ガラスの製造工程において、種々の簡略化あるいは自動化による生産性改良、ひいてはコストダウンなどが検討され、提案されてきた。例えば、アルミニウムスペーサを折り曲げ方式にしたり、常温硬化型シール材の塗布方法を自動化させることがあげられる。また、第5図に示すようにアルミニウムスペーサの代わりに乾燥剤を練り込んだ樹脂をスペーサ4として用いる方法も提案されてきている。

しかし、こうした常温硬化型シール材を用いた複層ガラスでは、用いられるスペーサの種類を問わず、複層ガラス製造後、シール材の硬化のために長時間の養生を必要とする。そのため養生終了までは製品を出荷できない。

したがって、工場内に養生スペースを設け、ある一定期間製品を保管した後に出荷しなければならない、納期が長期化し、客先の要望に必ずしも応え得なかった。また、将来的に増加する需要に対応するには、これまで以上の養生スペースが必要となるため、これを回避し、十分な複層ガラスの供給量を確保するためには、

上記の養生時間の短縮が必要と考えられている。

複層ガラスの低コスト化の点からは、乾燥剤を練り込んだ樹脂からなる成形物をスペーサとして用い、二次シール材を用いずに複層ガラスを製造する方法が提案されている（特公昭61-20501）。しかし、このスペーサ用樹脂はスペーサとしては硬度が不足し、実際には上記樹脂からなるスペーサ単独では複層ガラスとしての形状の維持が困難であった。

また、押出成形可能な硬質樹脂、例えば、塩化ビニル樹脂やホットメルトブチルなどの熱可塑性樹脂に乾燥剤を練り込んだJIS A硬度（HsA）95の硬さを有する材料をスペーサとして用いる複層ガラスが知られている（特開平7-17748号公報）。しかし、このHsA95の硬さを有する材料を、複層ガラスのスペーサまたはシール材として用いた場合には、複層ガラスのシール部またはガラス板にかかる応力が大きく、シール部の剥離や複層ガラス自体のガラス割れが生じるなどの難点がある。したがって現状では、二次シール材を用いずに、複層ガラスとして要求されるスペーサのみで寿命、形状維持性、成形性などの特性を全て満足する複層ガラスは知られていない。

ところで、上記公報にもホットメルトブチルの例示があるように、ブチル系ゴムはその粘着性、高耐候性および低透湿性という面から建材用途などのシーリング剤として用いられている。しかし、硬度が低くコールドフロー性があるため、使用用途によっては長期耐久性の点で単独では問題がある。また熔融粘度が高いために、作業性が悪いという問題もある。硬度を向上させるために各種フィラーを混合する方法もあるが、フィラーの添加のみによって高硬度化を行うと、熔融粘度が上昇し作業性を著しく損なうことに加え、場合によっては、引張り強度や引き裂き強度が低下するため望ましくない。

すなわち、ブチル系ゴムはガラス板とスペーサとの間の面をシールし、気密性を維持する機能を有することから、複層ガラスの端部シール材として好適にもちいることができる。この場合、ブチル系ゴムの硬度が低いことより通常はアルミニウム製などの金属製のスペーサが用いられ、スペーサとガラス板との間にブチル系ゴムがシール材として配置されることになる。しかし、前述のように金属製スペーサを用いる必要上複層ガラスの製造工程が複雑化してしまう。

こうして、金属製スペーサを必要とせず、製造工程をより簡略化し得るシーリング剤の開発が望まれている。現状では、二次シールを用いずに、複層ガラスとして要求されるスペーサのみで寿命、形状維持性、成形性などの特性を全て満足する複層ガラスは知られていない。

本発明の目的は、建材用途に必要な性能を満足する樹脂組成物、特に複層ガラスにおいて上記の二次シール材を実質的に必要としないスペーサ用樹脂組成物を提供することにある。また、本発明の目的は、製造後の長時間を要する養生の問題を解消し、これまでにない高い生産性を実現できる複層ガラスを提供することにある。

#### 発明の開示

本発明は、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとを含み、両者の合計量に対するブチル系ゴムの割合が50～98重量%、結晶性ポリオレフィンの割合が2～50重量%であることを特徴とする建材用樹脂組成物を提供する。

また、本発明は、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンと無機フィラーとを含み、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとの合計量に対するブチル系ゴムの割合が50～98重量%、結晶性ポリオレフィンの割合が2～50重量%であり、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとの合計100重量部に対する無機フィラーの割合が200重量部以下であること特徴とする建材用樹脂組成物を提供する。

さらに、本発明は、2枚以上のガラス板が、その間に中空層を形成するようにスペーサを介して隔置されて対向配置された複層ガラスにおいて、前記スペーサは、25℃においてJIS A硬度が10～90の熱可塑性樹脂組成物からなることを特徴とする複層ガラスを提供する。

#### 図面の簡単な説明

第1図は、本発明の複層ガラスの構成の一例を示す概略部分断面図である。第2図は、熱可塑性樹脂組成物からなるスペーサを用いて複層化する前の複層ガラスの構成を示す概略部分断面図である。第3図は、本発明において熱可塑性樹脂組成物の熔融に用いた押出機の概略図である。第4図は、従来の複層ガラスの構成の一例を示す断面図である。第5図は、従来の複層ガラスの構成の一例を示す断面図である。第6図は、クリープコンプライアンスJを測定する方法の一例を

説明する概略断面図である。

発明を実施するための最良の形態

以下、図面を参照して本発明をさらに詳細に説明する。

第1図は、本発明の複層ガラスの構成の一例を示す概略部分断面図であり、複層ガラス10は、2枚のガラス板1aおよび1bが、間に中空層30が形成されるようにスペーサ20のみによって所定の間隔に保持されてなる。スペーサ20は、JIS A硬度が10～90の熱可塑性樹脂組成物から形成されている。なお、上記の「スペーサ20のみによる」の意味は、他に二次シール材や金属製のスペーサなどを不要とすることを指すものであり、必要に応じて適用されるプライマー処理を含むものとする。

本発明の複層ガラスの構成においてスペーサ材料に用いる熱可塑性樹脂組成物とは、25℃においてJIS A硬度が10～90の熱可塑性樹脂組成物である。このようなスペーサ用樹脂組成物としては、上記特性を有する限り、いずれの熱可塑性樹脂組成物も使用できる。

なお、近年多方面で使用されている熱可塑性エラストマーや、加硫密度を調節して加熱による熔融流動しうるようにしたゴム系材料も上記の特性を有する限り本発明でいう「熱可塑性樹脂組成物」に包含される。さらには、これら熱可塑性樹脂組成物に、ジブチルフタレート、ジ-2-エチルヘキシルフタレートなどのいわゆる可塑剤を含めた配合物も、上記の特性を有する限り本発明でいう「熱可塑性樹脂組成物」に含まれる。

具体的には、本発明で使用する上記樹脂組成物は、低透湿性で熱熔融成形可能なゴムもしくはエラストマーまたは上記のゴムもしくはエラストマー以外の低透湿性の熱可塑性樹脂の少なくとも一方を含むことが好ましく、両者を含むことがより好ましい。さらに、複層ガラスを構成した場合に、複層ガラスの中空層への水分の侵入を防ぐために所定量の乾燥剤が練り込まれた樹脂組成物であることが好ましい。

上記の低透湿性で熱熔融成形可能なゴムもしくはエラストマーとしては、その水蒸気透過係数が好ましくは $3.000 \times 10^{-13} \text{ cm}^3 \cdot \text{cm} / \text{cm}^2 \cdot \text{sec} \cdot \text{Pa}$ 以下のゴムもしくはエラストマーであり、なかでもポリイソブチレンやイソ

ブチレンとイソブレンとを主体とするブチルゴム、ハロゲン化ブチルゴムなどのブチル系ゴムが好適である。これらの熱可塑性樹脂および低透湿性で熱熔融成形可能なゴムもしくはエラストマーは、単独または2種以上のブレンドで使用してもよい。

また、上記のゴムもしくはエラストマー以外の低透湿性熱可塑性樹脂としては、例えば、ポリエチレン、ポリプロピレン、塩化ビニリデン、ポリ塩化ビニルなどや、これらのポリマーを構成するモノマーの共重合体、またはそれらの変性物が挙げられ、特に高密度のポリエチレンが好ましい。これらの熱可塑性樹脂の水蒸気透過係数は $3000 \times 10^{-13} \text{ cm}^3 \cdot \text{cm} / \text{cm}^2 \cdot \text{sec} \cdot \text{Pa}$ 以下が好ましく、 $500 \times 10^{-13} \text{ cm}^3 \cdot \text{cm} / \text{cm}^2 \cdot \text{sec} \cdot \text{Pa}$ 以下がさらに好ましい。この熱可塑性樹脂は、特にスペーサの形状保持性能に寄与する。

本発明におけるスペーサ用樹脂組成物には、上記低透湿性で熱熔融成形可能なゴムもしくはエラストマー、このゴムもしくはエラストマー以外の熱可塑性樹脂に加え、乾燥剤が配合され、さらに無機フィラーやその他の添加物が必要に応じて配合される。乾燥剤としては、例えば、ゼオライト、アルミナ、シリカゲルなどのように、従来の複層ガラスのスペーサやシール材に混合されて使用される乾燥剤がいずれも使用できる。

このようなスペーサ用樹脂組成物は、上記成分を望ましい成分とするが、添加物として粘着付与剤、滑剤、顔料、帯電防止剤、老化防止剤、熱安定剤、充填材、発泡剤などを必要に応じて上記熱可塑性樹脂に配合して使用しうる。

このスペーサ用樹脂組成物は、上記成分を混練して調製される。その調製に際しては、得られる樹脂組成物のJIS A硬度が25℃において90以下になるように必要成分が配合される。90以下とする理由は次のようである。

JIS A硬度が90を超える熱可塑性樹脂を複層ガラスのスペーサとして用いようとした場合、クリープがほとんど起きないために、JIS R3209に示された耐久試験を実施した際、高温下で空気の膨張による応力がガラス板とスペーサとの接着界面にかかる。このため、接着力が不十分であれば剥離が発生し、仮に接着力が確保されている場合でもガラスが割れることがある。現在知られている接着剤でも、高温あるいは高圧をかけることによって、中空層が膨張する応

力に耐えるだけの接着力を得ることは可能であるが、高温高圧をかけることによってガラスの破損が発生し、著しく生産性が低下するため、製造コスト低減を目標とする本発明の目的には沿わない。

一方、硬度が低すぎると複層ガラスの形状維持性に問題が生じるので、樹脂組成物の J I S A 硬度は 25℃において 10 以上になるように必要成分を配合することが必要である。さらに J I S A 硬度が 10 以上であっても硬度が比較的小さい場合、中空層の厚みが厚いと板ずれを引き起こすことがある。

一般的に用いられる複層ガラスは、その中空層の厚みが 4～18mm 程度である（6mm または 12mm のものが多い）。したがって、硬度が比較的小さい場合には中空層の厚みが 6mm のものでは板ずれが生じなくとも、12mm のものでは板ずれが生じてしまうことがある。上記硬度を 40 以上にすることによって、中空層の厚みが 12mm のものであっても板ずれを生じないようにできる。このことから、本発明における複層ガラスにおいて熱可塑性樹脂スペーサの J I S A 硬度は 40 以上が特に好ましい。

J I S A 硬度が 90 を超える樹脂組成物をスペーサとして用いた複層ガラスは、ガラス板にかかる応力が大きい。そのため、J I S R 3209 で指定されている厚さ 5mm および厚さ 3mm のガラス板を用いたいずれの複層ガラスでも、加速耐久試験中にガラス割れが生じる。

これに対して J I S A 硬度が 90 の樹脂組成物をスペーサとして用いた複層ガラスは、厚さ 5mm のガラス板を用いた複層ガラスでは上記試験でガラス割れは発生しない。一方、厚さ 3mm のガラス板を用いた複層ガラスは上記試験でガラス割れが発生する可能性があった。したがって、スペーサ用樹脂組成物の J I S A 硬度の上限は 90 である。また、J I S A 硬度が 75 である樹脂組成物をスペーサとして用いた複層ガラスは、厚さ 5mm および厚さ 3mm のガラス板を用いたいずれの複層ガラスでも、上記試験ではガラス割れは発生しない。現在一般的に使用されている複層ガラス用のガラス板は厚さが 3mm のものであるので、スペーサ用樹脂組成物の J I S A 硬度は 40～75 の範囲がより好適である。

ところで、J I S A 硬度による規定が瞬間的なものであることに對し、クリ



クリープ特性を示すクリープコンプライアンス $J$ は、継続的な応力が加わる場合の樹脂の特性を示すもので、弾性率の逆数で表されるものである。このクリープコンプライアンス $J$ は、例えば次のように測定される。

第6図は、クリープコンプライアンス $J$ の測定方法を示す概略断面図である。測定されるべき樹脂材料60は、ガラス板61a, 61bに接着される面の大きさが $10 \times 50$  (mm)で、厚み12 mmに成形されている。そして、樹脂材料に常に $0.2 \text{ kg/cm}^2$ の応力が加わるように、 $40^\circ\text{C}$ の雰囲気温度中でガラス板を図の矢印の方向に引っ張り、5分後の材料の伸び量から、クリープコンプライアンス $J$ を計算する。なお、 $J$ の値はガラス板61a, 61bの厚みに依存しないが、ここでは厚み5 mmのガラス板を用いることとする。

例えば、複層ガラスは、その作製後の運搬において、複層ガラスの片側のガラス板を吸盤等で吸着し、パレットへ積み込まれる。逆に、複層ガラスをパレットから取り出すときも同様に吸着される。複層ガラスの吸盤によるいわゆる「片持ち」の状況は通常5分以下と考えられる。また、夏場の屋外の気温は $40^\circ\text{C}$ 程度に上昇する。そのため、作業中に板ずれを起こさないためには、クリープコンプライアンス $J$ が $40^\circ\text{C}$ 、ずりモード、測定開始5分後において $1 \times 10^{-5} (\text{cm}^2/\text{dyne})$ 以下であることが好ましい。また、クリープコンプライアンス $J$ が $40^\circ\text{C}$ 、ずりモード、測定開始5分後において $1 \times 10^{-10} (\text{cm}^2/\text{dyne})$ 以下であると、実質上ほとんどクリープしないため、ガラス板とスペーサとの間にかかる応力が大きくなり、剥離、ガラス割れ等の問題点が発生する。そのため、 $J$ が $40^\circ\text{C}$ 、ずりモード、測定開始5分後において $1 \times 10^{-10} (\text{cm}^2/\text{dyne})$ 以上であることが好ましい。

上記のように、複層ガラスの中空層の厚みは4～18 mm程度のものが多い。そのため、クリープコンプライアンス $J$ が $40^\circ\text{C}$ 、ずりモード、測定開始5分後において $1 \times 10^{-5} (\text{cm}^2/\text{dyne})$ 以下であっても比較的クリープコンプライアンス $J$ が大きい場合には、中空層の厚みが厚いと板ずれを引き起こすことがある。例えば、クリープコンプライアンス $J$ が大きい場合には、中空層が6 mmのものでは板ずれが生じなくとも、12 mmのものでは板ずれが生じてしまうことがある。そこで、クリープコンプライアンスを $1 \times 10^{-5} (\text{cm}^2/\text{dyne})$

e) 以下にすることによって、中空層の厚みが12mmのものであっても板ずれを生じないようにできる。

また、クリープコンプライアンスJの下限を $1 \times 10^{-9}$  ( $\text{cm}^2/\text{dyne}$ ) とすることは、特に好ましい。これは、 $1 \times 10^{-10}$  ( $\text{cm}^2/\text{dyne}$ ) の値で、例えば、JIS R3209で規定する耐久試験において、厚さ5mmのガラス板を用いた複層ガラスではガラス板が割れなくても、厚さ3mmのガラス板を用いた複層ガラスでガラス板が割れることがある。このため、種々の厚みのガラス板においてガラス板の割れが発生しないように、クリープコンプライアンスJの下限が40℃、ずりモード、測定開始5分後において $1 \times 10^{-9}$  ( $\text{cm}^2/\text{dyne}$ ) であることは、特に好ましい。

以上を総合すると、本発明におけるスペーサに用いる樹脂組成物として、JIS A硬度が40～75、クリープコンプライアンスJが40℃、ずりモード、測定開始5分後において $1 \times 10^{-6} \sim 1 \times 10^{-9}$  ( $\text{cm}^2/\text{dyne}$ ) の範囲のものを用いることは、特に好ましい。

また、樹脂組成物全体としての水蒸気透過係数が $5000 \times 10^{-13} \text{cm}^3 \cdot \text{cm}/\text{cm}^2 \cdot \text{sec} \cdot \text{Pa}$ 以下、さらに露点性能を維持するためには水蒸気透過係数を $500 \times 10^{-13} \text{cm}^3 \cdot \text{cm}/\text{cm}^2 \cdot \text{sec} \cdot \text{Pa}$ 以下にすることが望ましい。

以上のようなJIS A硬度、クリープコンプライアンスJおよび水蒸気透過係数を有するスペーサ用樹脂組成物の具体例は後述の実施例で説明するが、好ましい樹脂組成物の配合成分およびその配合割合は以下の通りである。

熱溶融成形可能なゴムもしくはエラストマー・・・10～80重量%、

上記のゴムもしくはエラストマー以外の熱可塑性樹脂・・・0～50重量%、

粘着付与剤・・・0～15重量%、

乾燥剤および添加剤（カーボンブラック、タルクなど）・・・10～60重量%。

なお、ここでいう添加剤は、例えば、滑剤、顔料、帯電防止剤、可塑剤、老化防止剤、熱安定剤、酸化防止剤、シランカップリング剤などの加水分解性シリル基含有化合物、発泡剤、無機フィラーを含む充填材等を指し、他で使用している

用語「添加物」は、添加剤から無機フィラーを除き粘着付与剤を加えたものを意味する。

さらに好適に用いることができるスペーサ用樹脂組成物として、熱熔融成形可能なゴムもしくはエラストマーにブチル系ゴムを用い、このゴムもしくはエラストマー以外の熱可塑性樹脂に結晶性ポリオレフィンを用いた、以下のものがあげられる。

ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとを含み、両者の合計量に対するブチル系ゴムの割合が50～98重量%、結晶性ポリオレフィンの割合が2～50重量%である樹脂組成物。

ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンと無機フィラーとを含み、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとの合計量に対するブチル系ゴムの割合が50～98重量%、結晶性ポリオレフィンの割合が2～50重量%であり、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとの合計100重量部に対する無機フィラーの割合が200重量部以下である樹脂組成物。

本発明におけるブチル系ゴムは、イソブチレンの単独重合体や他の単量体との共重合体、およびそれらの変性物をいう。共重合体としては比較的少量のイソブチレンと共重合して得られる共重合体（通常ブチルゴムと呼ばれているもの）が好ましい。変性物としてはハロゲン化ブチルゴムや部分架橋ブチルゴムなどがある。特に好ましいブチル系ゴムは、通常ブチルゴムと呼ばれているイソブチレンとイソブレンとの共重合体、および部分架橋ブチルゴムである。

本発明における結晶性ポリオレフィンは、エチレンやプロピレンなどのオレフィンの単独重合体や他の単量体との共重合体、およびそれらの変性物であって、結晶性を有しているものをいう。重合体の構造はシンジオタクチック構造やアイソタクチック構造であることが好ましいが、他の構造を含んでいてもよい。オレフィンとしては特にエチレンとプロピレンが好ましい。

共重合体としては2種以上のオレフィンの共重合体やオレフィンと他の単量体との共重合体があり、エチレンやプロピレンと結晶性を阻害しない他の単量体との共重合体が適当である。また共重合体としては、交互共重合体やランダム共重合体よりもブロック共重合体が適当である。変性物としては酸無水物基、カルボ

キシル基、エポキシ基などの官能基を導入した結晶性ポリオレフィンがある。

本発明において特に好ましい結晶性ポリオレフィン、実質的な単独重合体であるポリエチレンとポリプロピレンである。例えば、ポリエチレンとして低密度ポリエチレン、中密度ポリエチレン、高密度ポリエチレンなどを使用できる。結晶性ポリオレフィンの結晶化度は30%以上が好ましく、特に50%以上が好ましい。例えば、通常の結晶性ポリオレフィンにおける代表的な結晶化度の値は、低密度ポリエチレンで50～60%、高密度ポリエチレンで75～90%、ポリプロピレンで55～65%である。分子量は特に限定されないが、数平均分子量でポリエチレンでは約20万～80万、ポリプロピレンでは約10万～40万のものが適当である。

このようにポリエチレンやポリプロピレンは高い結晶性を有するためブチル系ゴムより低透湿である。なかでもより低い熔融粘度を示すものは、ブチル系ゴム単独の場合に比較して、組成物の熔融粘度が低下し成形加工性が向上する。したがって、種々の無機フィラーを配合することが可能となってより高硬度のスペーサ用樹脂材料を実現させ、また経済性の観点からも特にこれらが好ましい。

上記の樹脂組成物においてブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとの合計量に対する結晶性ポリオレフィンの割合は2～50重量%であり、好ましくは5～40重量%である。結晶性ポリオレフィンの割合が2重量%未満では、ブチル系ゴムの高硬度化が難しく、また50重量%を超えると結晶性ポリオレフィンの性質が主体となりブチル系ゴムの特性が発現し難くなる。

無機フィラーが配合される場合、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとの合計量に対する結晶性ポリオレフィンの割合は少なくてもよい。例えば、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとの合計100重量部に対して約50重量部以上の無機フィラーが配合される場合には、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとの合計量に対する結晶性ポリオレフィンの割合は2～20重量%で充分目的の効果が発揮される。

このようにブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとを含む本発明の樹脂組成物に実質的に有効量の無機フィラーを配合できる。実質的に有効量とは、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンの合計100重量部に対して1重量部以上をいう。

あまりに多量の無機フィラーを配合することは組成物の熔融粘度が上昇し、また、引張り強度や引き裂き強度が低下するため、配合量の上限は200重量部であり、好ましくは150重量部である。無機フィラー配合の場合の配合量の好ましい下限は10重量部である。

無機フィラーとしては、炭酸カルシウム、タルク、マイカ、カーボンブラックなど、通常無機フィラーとして用いられているものを、単独でまたは2種以上併用して使用できる。

本発明の樹脂組成物が少なくとも最終的な用途に使用される前において、それに含まれるブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとが高温下で混合されていることがきわめて有効である。この混合における高温とは結晶性ポリオレフィンの結晶融点以上の温度をいう。この混合温度はブチル系ゴムの分解点以下である必要があり、通常のブチル系ゴムの分解点である約300℃以下が好ましい。特に生産性などの面から200℃以下が好ましい。したがってまた結晶性ポリオレフィンの結晶融点も200℃以下が好ましい。

建材用樹脂材料はその使用温度範囲においてはできるだけ硬度変化の少ないことがより好ましい。こうした要件を満足するためには結晶性ポリオレフィンとしては、通常の使用上限温度以上に結晶融点を有するものが好ましい。建材用樹脂材料の通常の使用上限温度は約80℃である。

本発明においては結晶性ポリオレフィンが結晶相による凝集力で拘束されているために、ガラス転移温度を超えた温度領域でも非晶性樹脂に見られる急激な硬度低下や流動状態は結晶融点以下では起こらない。逆に、結晶融点を境に熔融粘度の著しい低下が見られ、ブチル系ゴムとの混練性を良好にならしめる効果が期待できる。

このような樹脂組成物には一般的に建材用樹脂材料に配合されうる乾燥剤および上記の添加物を配合できる。特にこの樹脂組成物をスペーサに用いる場合、ゼオライト、シリカゲル、アルミナなどの乾燥剤、粘着付与剤、可塑剤、シランカップリング剤、各種安定剤の配合が好ましい。

特にゼオライトなどの乾燥剤を樹脂組成物中に5～30重量%配合することが好ましい。また、粘着付与効果と可塑化効果を与えるために、ポリイソブチレン

を、ポリイソブチレン以外のブチル系ゴム 100 重量部に対し、200 重量部以下、特には 5～150 重量部添加することも好ましい。

以上を総合すると、本発明において、スペーサ用樹脂組成物の特に好ましい成分配合割合は、ブチル系ゴム 30～55 重量%、結晶性ポリオレフィン 1～8 重量%、無機フィラー 15～30 重量%、乾燥剤および添加物 20～40 重量%である（もちろんこの場合、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとの合計量に対するブチル系ゴムの割合が 50～98 重量%、結晶性ポリオレフィンの割合が 2～50 重量%である）。

本発明の樹脂組成物は、前記のように少なくともブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとを結晶性ポリオレフィンの結晶融点以上ブチル系ゴムの分解点以下の温度で混合して製造されることが好ましい。この混合温度は 100～280℃、特に 120～250℃、が好ましい。他の配合物や添加物は同時に混合してもよく、その混合前または後に混合してもよい。

本発明の組成物は実質的に熱可塑性の組成物であり、通常の熔融混合押出し機やニーダーなどの混合機で混合できる。さらに、上記混合操作と連続して成形を行うこともできる。また、組成物を製造してペレット状などの成形材料とし、その後成形を行うこともできる。成形法としては押出し成形法や射出成形法などの熔融成形法を使用できる。

この樹脂組成物をスペーサに用いる場合、成形操作と連続して成形物を、2枚以上のガラス板が対向配置された複層ガラス材料の端部に配置して複層ガラスを製造できる。この場合成形機から出た高温の組成物を用いることにより、ガラス板との高い接着性が得られる。また、アプリケーションなどの装置を用いて組成物の温度低下を抑制しながら、複層ガラス材料に適用することもできる。この装置としては加熱可能なものが好ましい。

上記の建材用樹脂組成物は、第1図に示す構造の複層ガラス用スペーサを形成するための組成物に限定されない。例えば、この建材用樹脂よりも硬い材料（例えば金属製や硬質合成樹脂製）のスペーサとシール材とを組み合わせる端部をシールする構造の複層ガラスにおいて、シール材の材料として本発明の建材用樹脂組成物を使用できる。また、複層ガラス以外の建材用途などの樹脂材料として本

発明の建材用樹脂組成物を使用できる。

その一方で、前述のように、本発明の建材用樹脂組成物は、樹脂材料の硬さによってガラス板を隔置する構造の複層ガラスに用いる樹脂スペーサ用の樹脂組成物として特に優れる。そして、結晶性ポリオレフィンや無機フィラーの配合量を変えて適当な硬さの樹脂材料とすることにより、25℃におけるJIS A硬度(HsA)が10～90である、複層ガラス用樹脂スペーサを実現できる。

本発明におけるスペーサ材料は上記配合成分および比率に限定されないが、上記の配合割合において本発明において好ましいJIS A硬度および水蒸気透過係数を有する樹脂組成物が得られる。

本発明の複層ガラスの構成に使用するガラス板は、通常、建材、車両などに広く使用されている窓、ドアなどのガラス板、強化ガラス、合わせガラス、金属網入りガラス、熱線吸収ガラス、さらには、熱線反射ガラス、低反射率ガラスなどのように、表面に金属や他の無機物を薄くコーティングしたガラス板、有機ガラスと呼ばれるアクリル樹脂板、ポリカーボネート板などであり、特に限定されない。

また、複層ガラスは2枚のガラス板から構成されるものでもよく、3枚以上のガラス板から構成されるものでもよい。

本発明の複層ガラスは、必要に応じてスペーサが当接するガラス面に溶剤に溶解した接着剤を塗布することもできる。そして、接着剤を風乾した後に、第2図に示すように2枚のガラス板1a, 1bを所定間隔（例えば6mm、12mm）に保持し、次に、上記の樹脂組成物を第3図に示すような適当な直径のシリンダーを有する汎用の押出機を用いて、例えば150～200℃の温度で熔融させ、適当な先端形状をもつダイから押出しながら、2枚のガラス板間に介在させて冷却することによって形成される。

この複層化の方法は一例であって、本発明の複層ガラスの製造方法自体は上記方法に限定されず、例えば、前記樹脂組成物から予め所望形状のスペーサを成形しておき、これを例えば2枚のガラス板で熱圧着させて形成してもよい。

上記接着剤に適したものとしては、ポリエステルポリオールとポリイソシアネートとの組み合わせまたはその反応生成物を含む接着剤（イ）や、ブチレン基を

繰り返し単位とする末端反応性オリゴマーと鎖伸長剤とを反応させて得られるポリマーまたはプレポリマーを有効成分とする接着剤（ロ）等が例示できる。

接着剤（イ）としては、少なくとも1種類の脂肪族ジカルボン酸を原料とする分子量1万以上の高分子量ポリエステルポリオールを主剤とし、1分子あたり2個以上のイソシアネート基を含むポリイソシアネートを硬化剤とする接着剤が望ましい。

ポリイソシアネートとしては、2, 4-トリレンジイソシアネート、2, 6-トリレンジイソシアネート、フェレンジイソシアネート、キシレンジイソシアネート、4, 4'-ジフェニルメタンジイソシアネート、ナフチレン-1, 5-ジイソシアネート、およびそれらに水添した化合物、エチレンジイソシアネート、プロピレンジイソシアネート、テトラメチレンジイソシアネート、ヘキサメチレンジイソシアネート、イソホロンジイソシアネート、1-メチル-2, 4-ジイソシアネートシクロヘキサン、1-メチル-2, 6-ジイソシアネートシクロヘキサン、ジシクロヘキシルメタンジイソシアネート、トリフェニルメタントリイソシアネートなどのポリイソシアネートおよび前記のポリイソシアネートとトリメチロールプロパンとのアダクト体、ビュレット体、イソシアネートヌレート体などが挙げられる。

初期接着力の発現を早めるためには芳香族系ポリイソシアネートが好ましく、本発明におけるスペーサとの相溶性を上げ、接着力を向上させるためには脂肪族系のポリイソシアネートが好ましい。これらのポリイソシアネート化合物は、1種単独でも、2種類以上を併用してもよい。ポリイソシアネートの含有量は特に限定されないが、組成物への硬化性付与の点から、ポリエステルポリオールの水酸基に対し1～10倍等量の配合比で含有されているのが望ましい。

この接着剤（イ）にはシランカップリング剤が含有されていることが好ましい。この場合、シランカップリング剤としては、エポキシ基、アミノ基、メルカプト基の少なくとも1種類を分子内に有する加水分解性シリル基含有化合物であり、例えば、 $\gamma$ -グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、ジ（ $\gamma$ -グリシドキシプロピル）ジメトキシシラン、 $\beta$ -（3, 4-エポキシシクロヘキシル）エチルトリメトキシシラン、 $\gamma$ -アミノプロピルトリエトキシシラン、N- $\beta$ -アミノエチル-



γ-アミノプロピルジメトキシメチルシラン、γ-(N-フェニルアミノ)プロピルトメトキシシラン、メルカプトプロピルトリメトキシシラン、メルカプトプロピルトリエトキシシランなどがある。

これらの添加量は特に制限はないが、一般には経済性の点などからポリエステルポリオールおよびポリイソシアネートに対し、0.05～10重量部が適当であろう。

接着剤(ロ)において、ブチレン基を繰り返し単位とする末端反応性オリゴマーは、炭素数4の2価の炭化水素を繰り返し単位とし、かつオリゴマー末端に水酸基、カルボキシル基、アミノ基、メルカプト基、エポキシ基、イソシアネート基などの反応性官能基を有する化合物である。この官能基と反応し得る官能基を有する鎖伸長剤を反応させて伸長や架橋させることにより接着剤として機能する高分子量のポリマーとなり得る化合物である。

繰り返し単位であるブチレン基としては、エチルエチレン基 $[-CH_2CH(CH_2CH_3)-]$ 、1,2-ジメチルエチレン基 $[-CH(CH_3)-CH(CH_3)-]$ 、1,1-ジメチルエチレン基 $[-C(CH_3)_2-CH_2-]$ 、テトラメチレン基 $[-(CH_2)_4-]$ などがある。

上記鎖伸長剤としては、例えば、3官能以上のイソシアネート基を有する化合物を少なくとも1成分とするポリイソシアネートや、3官能以上の加水分解性アルコキシシリル基を有する化合物等のシランカップリング剤を少なくとも1成分とする配合物、あるいは、同じく3官能以上の2重結合を有する成分とそれを反応せしめるラジカル開始剤とを含有する配合物等が挙げられる。ポットライフ等の貯蔵安定性等から上記例示のポリイソシアネートが望ましい。

これら接着剤(イ)、(ロ)にさらに必要に応じて、溶剤、触媒、顔料、フィラー、酸化防止剤、熱安定剤、老化防止剤等を加えることもできる。

次に実施例および比較例を挙げて本発明をさらに具体的に説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されない。

#### 《建材用樹脂組成物の例(1)》

まず、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとを含み、両者の合計量に対するブチル系ゴムの割合が50～98重量%、結晶性ポリオレフィンの割合が2～5

0重量%である建材用樹脂組成物、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンと無機フィラーとを含み、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとの合計量に対するブチル系ゴムの割合が50～98重量%、結晶性ポリオレフィンの割合が2～50重量%であり、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとの合計100重量部に対する無機フィラーの割合が200重量部以下である建材用樹脂組成物に関する実施例を示す。

下記組成例1～7は実施例であり、組成例8～12は比較例である。

〔組成例1〕

ブチル系ゴムとしてムーニー粘度47 ML (1+8) 100℃であるブチルゴムを用い、結晶性ポリオレフィンとしてメルトインデックス20、結晶融点130℃、結晶化度約80%である高密度ポリエチレン(HDPE)を用いた。

ブチルゴムとHDPEをラボブラストミルを用いて160℃、20rpmで30分間熔融混合を行った。硬度(HsA)についてはJIS K6301に準じて測定した。熔融粘度は160℃でキャピログラフにより測定を行い、せん断速度 $91\text{ sec}^{-1}$ の値を示した。水蒸気透過係数については、60℃で薄膜の片側に20mmHg程度の水蒸気圧をかけ、もう一方を真空にし、薄膜を透過してくる水蒸気の速度から求めた。160℃における粘着性(高温タック)については、必要十分なタックが発現している場合を○とし、タックが不十分な場合を×とし、その中間の場合を△とした。

上記の材料と方法を用い、ブチルゴム70重量%とHDPE30重量%からなる組成物について評価した。結果を表1に示す。なお、表1、表2および表3において、材料の組成の数値は重量%を表し、熔融粘度は $10^4$ ポイズを単位とし、水蒸気透過係数は $10^{-13}\text{ cm}^3 \cdot \text{cm} / (\text{cm}^2 \cdot \text{sec} \cdot \text{Pa})$ を単位とする。

〔組成例2〕

組成例1と同じ材料と方法を用い、ブチルゴム80重量%とHDPE20重量%からなる組成物について組成例1と同様に評価した。結果を表1に示す。

〔組成例3〕

組成例1と同じブチルゴムおよびHDPEを用い、さらに無機フィラーとしてタルクとHAF型カーボンブラックを用いて、組成例1と同じ方法で試験を行っ

た。

ブチルゴム 47.5 重量%、HDPE 2.5 重量%、タルク 30 重量%、カーボンブラック 20 重量%からなる組成物についての評価結果を表 2 に示す。

[組成例 4]

組成例 3 と同じ材料を用いたブチルゴム 45 重量%、HDPE 5 重量%、タルク 30 重量%、カーボンブラック 20 重量%からなる組成物について、組成例 3 と同じように評価した結果を表 2 に示す。

[組成例 5]

ブチル系ゴムとしてムーニー粘度 45 ML (1 + 3) 121℃である部分架橋ブチルゴムを用い、結晶性ポリオレフィンとして組成例 1 と同じHDPEを用い、部分架橋ブチルゴム 80 重量%とHDPE 20 重量%からなる組成物について、組成例 1 と同様に評価した結果を表 3 に示す。

[組成例 6]

組成例 5 と同じ部分架橋ブチルゴムとHDPE、および分子量 12000 のポリイソブチレンを用い、部分架橋ブチルゴム 67.5 重量%、HDPE 22.5 重量%および粘度平均分子量 12000 のポリイソブチレン（以下、PIB-A という）10 重量%からなる組成物について、組成例 1 と同様に評価した結果を表 3 に示す。

[組成例 7]

ブチル系ゴムとして粘度平均分子量 72000 のポリイソブチレン（以下、PIB-B という）67.5 重量%、PIB-A 10 重量%および組成例 1 と同じHDPE 22.5 重量%からなる組成物について、組成例 1 と同様に評価した結果を表 4 に示す。

[組成例 8]

組成例 1 に用いたものと同じHDPE単独について組成例 1 と同様に評価した結果を表 1 に示す。なお硬度についてはこの例のみHsDで測定した。

[組成例 9]

組成例 1 と同じ材料と方法を用い、ブチルゴム 40 重量%とHDPE 60 重量%からなる組成物を評価した結果を表 1 に示す。

## [組成例 10]

組成例 1 に用いたものと同じブチルゴム単独について組成例 1 同様に評価した結果を表 1 に示す。

## [組成例 11]

組成例 3 と同じ材料を用いたブチルゴム 50 重量%、タルク 30 重量%、カーボンブラック 20 重量%からなる組成物について、組成例 3 と同様に評価した結果を表 2 に示す。

## [組成例 12]

組成例 3 と同じ材料を用いたブチルゴム 45 重量%、タルク 35 重量%、カーボンブラック 20 重量%からなる組成物について、組成例 3 と同様に評価した結果を表 2 に示す。

[表 1]

	ブチルゴム	HDPE	硬 度	熔融粘度	水蒸気 透過係数	高 温 タック
組成例 1	70	30	40	1.61	35.3	○
組成例 2	80	20	10	1.62	47.3	○
組成例 8	0	100	(68)	0.541	7.5	×
組成例 9	40	60	90	0.985	16.5	×
組成例 10	100	0	0	2.52	158	○

[表 2]

	ブチル ゴム	HDPE	タルク	カーボン ブラック	硬度	溶 融 粘 度	水蒸気 透過係数	高 温 タック
組成例 3	47.5	2.5	30	20	25	3.58	9.2	○
組成例 4	45	5	30	20	45	3.16	3.8	○
組成例 11	50	0	30	20	0	3.85	23.3	○
組成例 12	45	0	35	20	0	4.02	21.8	○

[表 3]

	部分架橋 ブチルゴム	HDPE	ポリイソ ブチレン	硬度	溶 融 粘 度	水蒸気 透過係数	高 温 タック
組成例 5	80	20	—	28	4.08	54.0	○
組成例 6	67.5	22.5	10	42	2.87	43.5	○

[表 4]

	PIB —A	PIB —B	HDPE	硬度	溶 融 粘 度	水蒸気 透過係数	高 温 タック
組成例 7	10	67.5	22.5	55	2.65	43.5	○

表 1 に示すようにポリエチレンを添加することによって、ブチルゴムの特性である水蒸気透過性、タックを損なうことなく高硬度化し、また、表 2 に示すように無機フィラーを加えることにより、少量ポリエチレンを添加するだけでも高硬度化が実現できた。さらに、表 3、4 に示すようにブチルゴムの代わりに部分架橋ブチルゴムを使用でき、またポリイソブチレンを配合することもできる。

#### 《建材用樹脂組成物の例 (2)》

##### [組成例 13]

表 5 に示す組成物において、乾燥剤を除く成分を混練して J I S A 硬度が 65 の樹脂組成物を得た後に、4 A 型乾燥ゼオライトパウダーからなる乾燥剤を加え、さらに混練して乾燥剤を均一に分散させて J I S A 硬度が 85 のスペーサ用樹脂組成物を得た。

##### [組成例 14～30]

組成例 13 と同様の手順で、表 5 に示す配合でゼオライト混合後における J I S A 硬度が表 6 に示す値であるスペーサ用樹脂組成物を得た。

#### 《複層ガラスの例》

次に、上記組成例 13～30 のスペーサ用樹脂組成物を用いて複層ガラスを作製した例を示す。下記例 1～13 は実施例であり、例 14～18 は比較例である。

##### [例 1]

組成例 13 のスペーサ用樹脂組成物を直径 40 mm のシリンダーを有するゴム

用押出機を用いて、予めスペーサ当接部をプライマー処理したサイズ320×500mm、厚さ3mmまたは5mmの2枚のフロートガラス板の間に6mmまたは12mmの間隔を保ち、ガラス板の外周部にスペーサを押出成形して本発明の複層ガラスを得た。

[例2～18]

例1と同様の手順で、組成例14～30のスペーサ用樹脂組成物を用い、他は例1と同様にして複層ガラスを得た。

[評価方法]

耐板ずれ試験：得られた各複層ガラスの片側のガラス板を固定し、他方のガラス板に13kgの荷重をかけ、25℃の温度条件で被荷重側のガラス板の低下量を測定した。その移動量が20分間で0.5mm以下であるものを合格とした。

加速耐久試験：JIS R3209にしたがい、厚さ6mmのスペーサを有する複層ガラスについて行った。

露点測定：JIS R3209に記載の装置と方法にしたがって測定した。

これらの測定結果を表6に示す。

表中、

評価項目A：初期露点（6体中最も露点が高いもの）

B：JIS R3209加速耐久試験1類終了後露点（℃）

C：JIS R3209加速耐久試験2類終了後露点（℃）

D：JIS R3209加速耐久試験3類終了後露点（℃）

E：JIS 3類判定

F：耐久試験中における厚み（5mm／6mm／5mm：ガラス板／中空層／ガラス板）の複層ガラスのガラス割れ（100体中）

G：耐久試験中における厚み（3mm／6mm／3mm：ガラス板／中空層／ガラス板）の複層ガラスのガラス割れ（100体中）

H：板ずれ

評価結果a：露点－60℃以下

b：スペーサが硬いため、ガラス割れが発生

c：中空層の厚み12mmは板ずれあり、6mmは板ずれなし

[表 5]

	ブチル系ゴム				HDPE	無機フィラー		添加物	
	ブチル ゴム	部分架橋 ブチルゴム	PIB -A	PIB -B		タルク	カーボン ブラック	粘着 付与剤	ゼオ ライト
組成例 13		28.7			28.7	10.6	10.6		21.4
組成例 14		35.2	5.3		11.7	10.6	10.6	5.3	21.3
組成例 15			25.6	17.0	4.2	10.6	10.6	10.6	21.4
組成例 16	29.8		4.3		12.8	10.6	10.6	10.6	21.4
組成例 17		19.1	25.6		2.1	10.6	10.6	10.6	21.4
組成例 18		17.0	25.6		4.2	10.6	10.6	10.6	21.4
組成例 19			21.3	21.3	4.2	10.6	10.6	10.6	21.4
組成例 20	42.6				4.2	10.6	10.6	10.6	21.4
組成例 21		14.8	25.6		6.4	10.6	10.6	10.6	21.4
組成例 22	15.6		15.6		15.8	10.6	10.6	10.6	21.4
組成例 23		21.3	4.2		21.3	10.6	10.6	10.6	21.4
組成例 24	45.9				0.9	10.6	10.6	10.6	21.4
組成例 25		46.8				10.6	10.6	10.6	21.4
組成例 26		11.5			46.0	10.6	10.6		21.3
組成例 27		5.6			51.9	10.6	10.6		21.3
組成例 28		21.3	25.6			10.6	10.6	10.6	21.4
組成例 29		8.5	4.2		34.0	10.6	10.6	10.6	21.3
組成例 30	12.5		15.6		18.7	10.6	10.6	10.6	21.4

[表 6]

	スペーサ物性		複層ガラス評価項目							
	硬度	J	A	B	C	D	E	F	G	H
例 1	85	—	a	a	a	a	合格	0	0	なし
例 2	80	—	a	a	a	a	合格	0	0	なし
例 3	65	—	a	a	a	a	合格	0	0	なし
例 4	75	—	a	a	a	a	合格	0	0	なし
例 5	40	$1 \times 10^{-6}$	a	a	a	a	合格	0	0	なし
例 6	60	$5 \times 10^{-7}$	a	a	a	a	合格	0	0	なし
例 7	65	$1 \times 10^{-7}$	a	a	a	a	合格	0	0	なし
例 8	65	$1 \times 10^{-7}$	a	a	a	a	合格	0	0	なし
例 9	70	$2 \times 10^{-8}$	a	a	a	a	合格	0	0	なし
例 10	90	—	a	a	a	a	合格	0	5	なし
例 11	90	$1 \times 10^{-9}$	a	-55	-54	-40	合格	0	4	なし
例 12	20	—	a	a	a	a	合格	0	0	c
例 13	10	$1 \times 10^{-5}$	a	a	a	a	合格	0	0	c
例 14	95	—	a	a	a	中止	b	0	4	なし
例 15	95	—	a	a	a	中止	b	11	19	なし
例 16	0	$5 \times 10^{-4}$	a	a	a	a	合格	0	0	あり
例 17	95	$1 \times 10^{-10}$	-60	10	中止	中止	b	9	14	なし
例 18	92	$1 \times 10^{-10}$	-60	5	中止	中止	b	9	11	なし

表 6 の結果より、スペーサの硬度を 10 ～ 90 にすることによって、複層ガラスのガラス割れを低減できるとともに、板ずれ等を防止できる。この場合、スペーサを上記の樹脂組成物のみで、露点の上昇がなく、複層ガラスの形状が保持された複層ガラスが得られる。

一方、例 10、11 の複層ガラスは、厚みが 6 mm のガラス板を用いた場合にはガラス割れの発生がないが、厚み 3 mm のガラス板を用いた場合には若干ガラス割れが見られる。また、例 12、13 の複層ガラスは、中空層の厚みが 6 mm



の場合には板ずれが発生しないが、中空層の厚みが 12 mm の場合には板ずれが発生することがある。

このことから、スペーサ用の樹脂組成物の硬度として、HsA40～75 が特に好ましいことがわかる。さらに、スペーサ用の樹脂組成物のクリープコンプライアンス J の値として、 $1 \times 10^{-10} \sim 1 \times 10^{-5}$  が好ましく、特に  $1 \times 10^{-9} \sim 1 \times 10^{-6}$  が好ましいことがわかる。

なお、例 10 の複層ガラスに用いたスペーサ用樹脂組成物は、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとの合計量に対するブチル系ゴムの割合が 98.08 重量%、結晶性ポリオレフィンの割合が 1.92 重量%である。一方、例 10 の複層ガラスでは中空層の厚みによっては若干の板ずれが生じることがある。このことから、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとの合計量に対するブチル系ゴムの割合が 50～98 重量%、結晶性ポリオレフィンの割合が 2～50 重量%であるということは、上記組成例 22 の配合割合も実質的に含むものではあるが、組成例 13～21、23 のような配合割合が好ましいことがわかる。

また、例 18 の複層ガラスに用いたスペーサ用樹脂組成物は、本発明における建材用樹脂組成物の組成範囲に含まれるものである。このことから、例 18 の樹脂組成物（組成例 30）は、本発明における建材用樹脂組成物のうち、スペーサ用途には不向きなものであることがわかる。

ところで、本発明における建材用樹脂組成物は、上記のようにスペーサのほかには建材用のシール材に用いられるものである。したがって、組成例 30 の樹脂組成物は、ガラス板のように脆性のものでない外壁材等をシールする、低透湿性のシール材として好適である。

#### 産業上の利用の可能性

本発明によれば、二次シール材を充填する作業を削減して、養生時間が不要であり、複層ガラス製造時の工程数を大幅に削減でき、かつ複層ガラスが高い生産性および低コストで提供される。

請 求 の 範 囲

1. ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとを含み、両者の合計量に対するブチル系ゴムの割合が50～98重量%、結晶性ポリオレフィンの割合が2～50重量%であることを特徴とする建材用樹脂組成物。
2. ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンと無機フィラーとを含み、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとの合計量に対するブチル系ゴムの割合が50～98重量%、結晶性ポリオレフィンの割合が2～50重量%であり、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとの合計100重量部に対する無機フィラーの割合が200重量部以下であること特徴とする建材用樹脂組成物。
3. 結晶性ポリオレフィンがポリエチレン、ポリプロピレンまたはそれらの変性体から選ばれる1種以上の重合体からなる、請求項1または2の建材用樹脂組成物。
4. 2枚以上のガラス板が、その間に中空層を形成するようにスペーサを介して隔置されて対向配置された複層ガラスにおいて、前記スペーサは、25℃においてJIS A硬度が10～90の熱可塑性樹脂組成物からなることを特徴とする複層ガラス。
5. 前記スペーサは、クリープ特性を示すクリープコンプライアンスJが40℃、ずりモード、測定開始5分後において $1 \times 10^{-10}$  (cm<sup>2</sup>/dyne) 以上 $1 \times 10^{-5}$  (cm<sup>2</sup>/dyne) 以下である熱可塑性樹脂組成物からなることを特徴とする請求項4の複層ガラス。
6. 前記熱可塑性樹脂組成物が、一方が熱熔融成形可能なゴムもしくはエラストマーである少なくとも二種類の熱可塑性樹脂と乾燥剤とを含むものである請求項4または5の複層ガラス。
7. 前記熱可塑性樹脂組成物が、下記成分からなる請求項4または5の複層ガラス。  
熱熔融成形可能なゴムもしくはエラストマー・・・10～80重量%、  
前記ゴムもしくはエラストマー以外の熱可塑性樹脂・・・0～50重量%、  
粘着付与剤・・・0～15重量%、  
乾燥剤および添加剤・・・10～60重量%。

8. 前記熱可塑性樹脂組成物が、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとを含み、両者の合計量に対するブチル系ゴムの割合が50～98重量%、結晶性ポリオレフィンの割合が2～50重量%であることを特徴とする請求項4または5の複層ガラス。

9. 前記熱可塑性樹脂組成物が、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンと無機フィラーとを含み、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとの合計量に対するブチル系ゴムの割合が50～98重量%、結晶性ポリオレフィンの割合が2～50重量%であり、ブチル系ゴムと結晶性ポリオレフィンとの合計100重量部に対する無機フィラーの割合が200重量部以下であること特徴とする請求項4または5の複層ガラス。

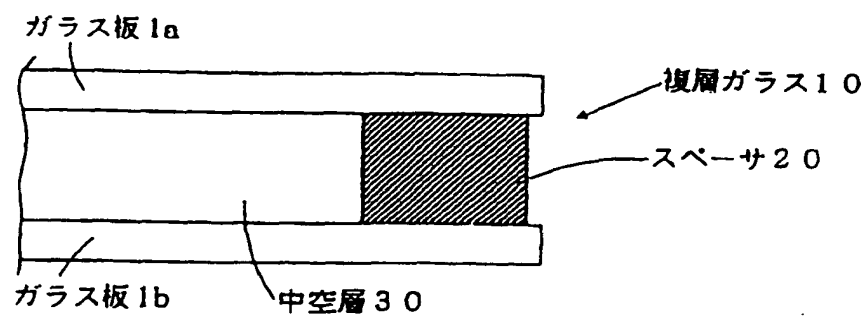
10. 結晶性ポリオレフィンがポリエチレン、ポリプロピレンまたはそれらの変性体から選ばれる1種以上の重合体からなる、請求項8または9の複層ガラス。

11. 前記ゴムもしくはエラストマー以外の熱可塑性樹脂の水蒸気透過係数または結晶性ポリオレフィンの水蒸気透過係数が、 $3000 \times 10^{-13} \text{ cm}^3 \cdot \text{cm} / \text{cm}^2 \cdot \text{sec} \cdot \text{Pa}$ 以下である請求項7～10のいずれかの複層ガラス。

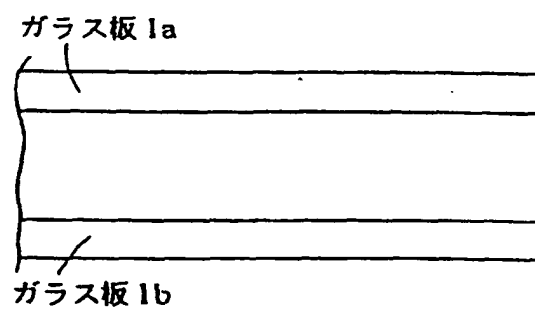
12. 前記熱溶解成形可能なゴムもしくはエラストマーの水蒸気透過係数またはブチル系ゴムの水蒸気透過係数が、 $3000 \times 10^{-13} \text{ cm}^3 \cdot \text{cm} / \text{cm}^2 \cdot \text{sec} \cdot \text{Pa}$ 以下である請求項6～11のいずれかの複層ガラス。

13. 前記熱可塑性樹脂組成物の水蒸気透過係数が、 $5000 \times 10^{-13} \text{ cm}^3 \cdot \text{cm} / \text{cm}^2 \cdot \text{sec} \cdot \text{Pa}$ 以下である請求項4～12のいずれかの複層ガラス。

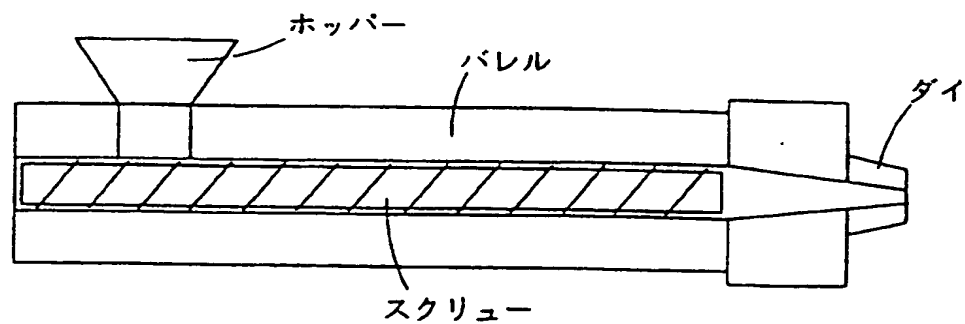
第1図



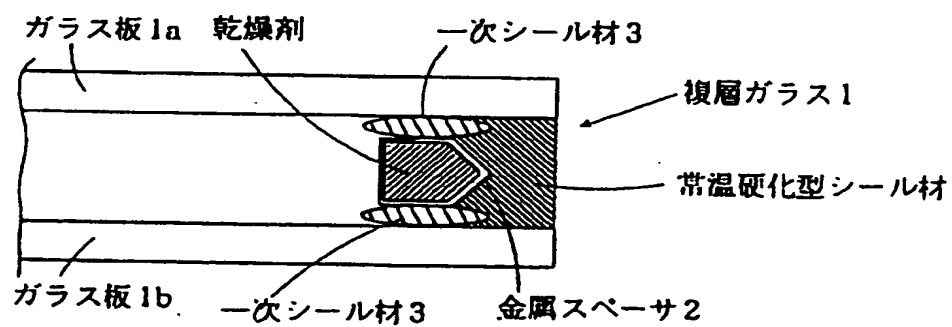
第2図



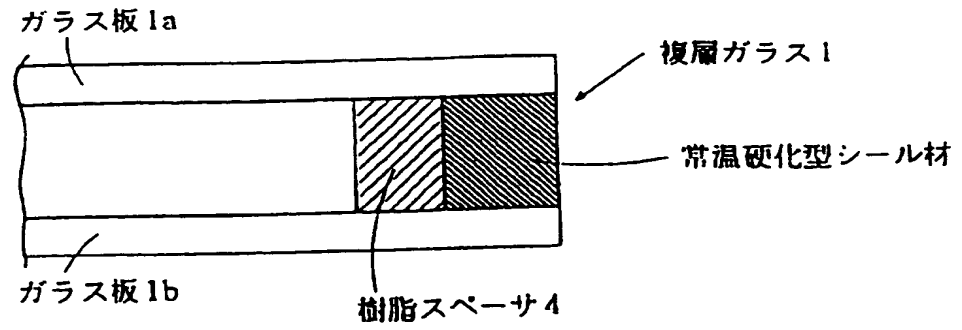
第3図



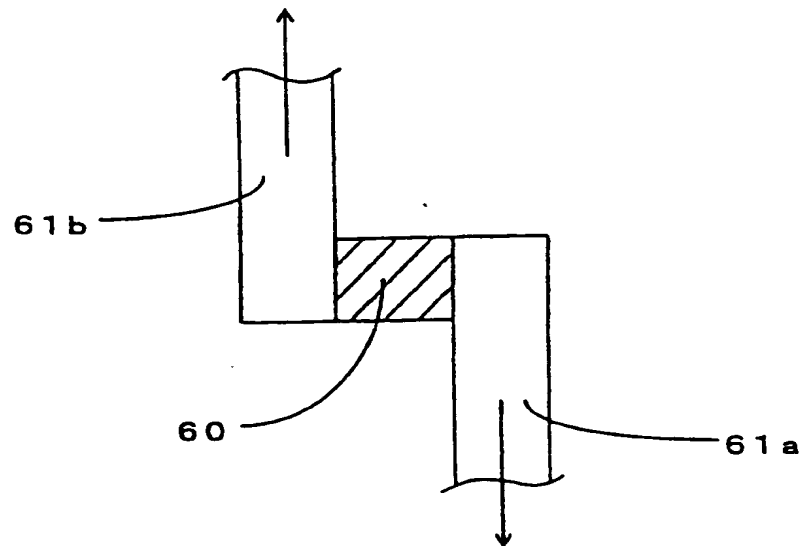
第4図



第5図



第6図



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP96/03787

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int. Cl<sup>6</sup> C08L23/04, E06B3/66, C03C27/10

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int. Cl<sup>6</sup> C08L23/04, E06B3/66, C03C27/00, C03C27/10, C09K3/10

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1926 - 1996	Jitsuyo Shinan Toroku
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971 - 1996	Koho
Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994 - 1996	1996

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP, 4-501433, A (Exxon Chemical Patents Inc.), March 12, 1992 (12. 03. 92), Claim; page 3, upper right column, line 25 to page 4, lower right column, line 7 & WO, 90/05165, A1 & EP, 0379779, A1 & US, 379779, A1	1 - 3
A	JP, 6-299010, A (Toyoda Gosei Co., Ltd.), October 25, 1994 (25. 10. 94), Claim; page 2, left column, lines 14 to 18; page 2, right column, line 6 to page 3, left column, line 27 (Family: none)	1 - 13
A	JP, 7-17748, A (Tokai Kogyo K.K.), January 20, 1995 (20. 01. 95), Claim; page 4, left column, line 30 to page 7, left column, line 2 (Family: none)	4 - 13
PA	JP, 8-12719, A (Mitsubishi Chemical Corp.), January 16, 1996 (16. 01. 96), Claim; page 5, right column, line 14	1 - 13

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.☐ See patent family annex.

\* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"Z" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
March 19, 1997 (19. 03. 97)Date of mailing of the international search report  
April 8, 1997 (08. 04. 97)Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Facsimile No.

Authorized officer

Telephone No.

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No.

PCT/JP96/03787

**C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT**

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
	(Family: none)	



## 国際調査報告

国際出願 号 PCT/JP96/03787

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>8</sup> C08L23/04, E06B 3/66, C03C27/10

## B. 調査を行った分野

## 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>8</sup> C08L23/04, E06B 3/66, C03C27/00,  
C03C27/10, C09K 3/10

## 最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1926-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-1996年
日本国登録実用新案公報	1994-1996年
日本国実用新案登録公報	1996年

## 国際調査で使用了電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	JP, 4-501433, A (エクソン・ケミカル・パテント・インク), 12. 3月. 1992 (12. 03. 92), 特許請求の範囲, 第3頁右上欄25行 ~第4頁右下欄7行 & WO, 90/05165, A1 & EP, 0379779, A1 & US, 379779, A1	1- 3
A	JP, 6-299010, A (登田合成株式会社), 25. 10月. 1994 (25. 10. 94), 特許請求の範囲, 第2頁左欄14行~同欄18行, 第2頁右 欄6行~第3頁左欄27行 (ファミリーなし)	1-13
A	JP, 7-17748, A (東海興業株式会社), 20. 1月. 1995 (20. 01. 95), 特許請求の範囲, 第4頁左欄30行~第7頁左欄2行 (ファミリーなし)	4-13

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
「E」 先行文献ではあるが、国際出願日以後に公表されたもの  
「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

## の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの  
「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの  
「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの  
「&」 同一パテントファミリー文献

## 国際調査を完了した日

19. 03. 97

## 国際調査報告の発送日

08.04.97

## 国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)  
郵便 号100  
東京都千代田区霞が関三丁目4 3号

## 特許庁審査官 (権限のある職員)

佐々木 秀次

印

4 J

8930

電話番号 03-3581-1101 内線

C (続き). 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
PA	J P, 8-12719, A (三菱化学株式会社), 16. 1月. 1996 (16. 01. 96), 特許請求の範囲, 第5頁右14行 (ファミリーなし)	1-13